

微小エネルギーを利用した革新的な環境発電技術の創出  
2020 年度採択研究代表者

2020 年度 年次報告書
------------------

李 哲虎

産業技術総合研究所 省エネルギー研究部門  
研究グループ長

低熱伝導率材料を用いた熱電モジュールの開発

## § 1. 研究成果の概要

今年度は  $\text{Mg}_3\text{Sb}_2$  系の熱電特性のさらなる向上を目指し、プロセスの最適化を行った。その結果、室温の ZT を 0.2 から 0.4 に、 $T=674\text{K}$  の ZT を 1.0 から 1.3 に向上させることに成功した。温度差がついた状態で測定する熱電モジュールの変換効率に大きく寄与する平均 ZT は 0.5 から 0.8 に向上した。 $\text{MgAgSb}$  系についてはプロセスの最適化を行い、従来1週間以上かかっていた作製時間の大幅短縮に成功した。

熱電モジュールの開発を目的とし、p 型材料である  $\text{MgAgSb}$  の電極形成を行なった。本材料は揮発性及び、水との反応性の高い Mg を主成分として含んでいるため、安定した電極の形成が難しい。今年度、様々な方法で電極形成を行い、界面抵抗  $10^{-5}\sim 10^{-6} \Omega\text{cm}^2$  の拡散防止層を形成することに成功した。また、大気中での材料安定性を評価し、 $\text{MgAgSb}$ 、 $\text{Mg}_3\text{Sb}_2$  ともに  $200^\circ\text{C}$  以下であれば大気中で使用可能なことを示唆する結果が得られた。

熱電性能の温度依存性を正確に計算するためには、電子の緩和時間の温度依存性を正確に計算する必要がある。そこで、今年度は電子・フォノン散乱による電子の緩和時間を第一原理的に計算する枠組みを構築した。適用先として  $\text{Mg}_3\text{Sb}_2$  を選択し、その輸送特性を計算した結果、ゼーベック係数は実験結果と近い温度依存性が得られた。また、電気伝導率においては、絶対値において 2 倍程度の差はあるものの、不純物の存在を仮定しない計算としては十分に実験と近い温度依存性が得られた。本成果は他の材料系にも適用可能であり、熱電特性の理論計算の精度を高めるものである。

## § 2. 研究実施体制

### (1) 李グループ

- ① 研究代表者: 李 哲虎 (産業技術総合研究所 省エネルギー研究部門 研究グループ長)
- ② 研究項目
  - ・ 熱電材料 122 Zintl 相の特性最適化
  - ・ 熱電モジュールの開発

### (2) 水口グループ

- ① 研究代表者: 水口 佳一 (東京都立大学 大学院理学研究科 准教授)
- ② 研究項目
  - ・  $\text{LnOPnCh}_2$  系の熱電材料開発

### (3) 末國グループ

- ① 研究代表者: 末國 晃一郎 (九州大学 大学院総合理工学研究院 准教授)
- ② 研究項目
  - ・ 熱電材料  $\text{MgAgSb}$  の特性最適化

(4) 黒木グループ

① 研究代表者:黒木 和彦 (大阪大学 大学院理学研究科 教授)

② 研究項目

- ・ 第一原理計算に基づくモジュール動作温度領域における熱電特性の最適化
- ・ 欠陥の形成エネルギー計算による元素置換のし易さの評価、並びに接合材料に適した元素選定

(5) 黒崎グループ

① 研究代表者:黒崎 健 (京都大学 複合原子力科学研究所 教授)

② 研究項目

- ・ 熱電材料の特性評価
- ・ 熱電素子の耐久性評価

【代表的な原著論文情報】

- 1) K. Kihou, H. Kunioka, H. Nishiate, and C.H. Lee, "Thermoelectric properties of yttrium-doped  $\text{Mg}_3(\text{Sb,Bi})_2$  synthesized by melting method", Journal of Materials Research and Technology 10, 438-444 (2021)